

## Method for reacting an organic compound with a hydroperoxide

Patent Number:  US6479680

Publication date: 2002-11-12

Inventor(s): BASSLER PETER (DE); RESCH PETER (DE); WALCH ANDREAS (DE); WENZEL ANNE (DE); HARDER WOLFGANG (DE); RIEBER NORBERT (DE); RUPPEL WILHELM (DE); ZEHNER PETER (DE); TELES JOAQUIM HENRIQUE (DE)

Applicant(s): BASF AG (DE)

Requested Patent:  DE19835907

Application Number: US20010762290 20010207

Priority Number (s): DE19981035907 19980807; WO1999EP05740 19990809

IPC Classification: C07D301/12

EC Classification:

Equivalents: AU5619999, CA2339710,  EP1102733 (WO0007965), JP2002522402T,  
 WO0007965, ZA200101003

---

### Abstract

---

A process for the reaction of an organic compound with a hydroperoxide comprises at least the steps (i) to (iii) below:(i) reaction of the hydroperoxide with the organic compound to give a mixture comprising the reacted organic compound and unreacted hydroperoxide,(ii) separation of the unreacted hydroperoxide from the mixture resulting from step (i),(iii) reaction of the hydroperoxide separated off in step (ii) with the organic compound

Data supplied from the esp@cenet database - I2



⑩ BUNDESREPUBLIK  
DEUTSCHLAND



DEUTSCHES  
PATENT- UND  
MARKENAMT

⑫ Offenlegungsschrift  
⑩ DE 198 35 907 A 1

⑥ Int. Cl.<sup>7</sup>:  
C 07 B 33/00  
C 07 D 301/03

⑪ Aktenzeichen: 198 35 907.1  
⑫ Anmeldetag: 7. 8. 1998  
⑬ Offenlegungstag: 17. 2. 2000

DE 198 35 907 A 1

⑪ Anmelder:

BASF AG, 67063 Ludwigshafen, DE

⑭ Vertreter:

Patent- und Rechtsanwälte Bardehle, Pagenberg,  
Dost, Altenburg, Geissler, Isenbruck, 68165  
Mannheim

⑫ Erfinder:

Baßler, Peter, Dr., 68519 Vierheim, DE; Harder,  
Wolfgang, Dr., 69469 Weinheim, DE; Resch, Peter,  
Dr., 67310 Hettenleidelheim, DE; Rieber, Norbert,  
Dr., 68259 Mannheim, DE; Ruppel, Wilhelm, Dr.,  
67227 Frankenthal, DE; Teles, Joaquim Henrique,  
Dr., 67122 Altrip, DE; Walch, Andreas, Dr., 74193  
Schwaigern, DE; Wenzel, Anne, 76676  
Graben-Neudorf, DE; Zehner, Peter, Dr., 67071  
Ludwigshafen, DE

⑮ Entgegenhaltungen:

US 52 62 550

Die folgenden Angaben sind den vom Anmelder eingereichten Unterlagen entnommen

Prüfungsantrag gem. § 44 PatG ist gestellt

⑯ Verfahren zur Umsetzung einer organischen Verbindung mit einem Hydroperoxid

⑰ Verfahren zur Umsetzung einer organischen Verbindung mit einem Hydroperoxid, das mindestens die folgenden Stufen (i) bis (iii) umfaßt:  
(i) Umsetzung des Hydroperoxides mit der organischen Verbindung unter Erhalt einer Mischung, umfassend die umgesetzte organische Verbindung und nicht umgesetztes Hydroperoxid,  
(ii) Abtrennung des nicht umgesetzten Hydroperoxides aus der aus Stufe (i) resultierenden Mischung,  
(iii) Umsetzung des abgetrennten Hydroperoxides aus Stufe (ii) mit der organischen Verbindung.

DE 198 35 907 A 1

## Beschreibung

Die vorliegende Erfindung betrifft ein Verfahren zur Umsetzung einer organischen Verbindung mit einem Hydroperoxid, wobei im Laufe des Verfahrens Hydroperoxid abgetrennt wird und erneut mit der organischen Verbindung umgesetzt wird. Ebenso betrifft die vorliegende Erfindung eine Vorrichtung zur Umsetzung einer organischen Verbindung mit einem Hydroperoxid.

Umsetzungen von organischen Verbindungen mit Hydroperoxiden, d. h. mit Verbindungen der allgemeinen Formel ROOH, werden in den gängigen Verfahren des Standes der Technik im Regelfall einstufig durchgeführt.

Der Begriff "einstufig" bezieht sich in diesem Zusammenhang auf das Hydroperoxid-Edukt und bedeutet, daß während des gesamten Verfahrens nur in einem einzigen Schritt Hydroperoxid der umzusetzenden organischen Verbindung zugegeben wird.

Die US-A-5,262,550 beschreibt beispielsweise ein Verfahren zur Epoxidierung von Alkenen, in dem in einer Stufe Alken mit Wasserstoffperoxid oder einem Wasserstoffperoxid-Precursor zum entsprechenden Alkenoxid umgesetzt wird.

Die US-A-4,883,260 offenbart ein Verfahren, in dem Alken mit Wasserstoffperoxid in einer Stufe im Stahlautoklaven bzw. im Glasautoklaven umgesetzt wird.

In S.-H. Wang, Process Economics Program, Report 2E, S. 6-1 bis 6-27, SRI International (1994) ist beispielsweise ein Verfahren beschrieben, in dem in einer Stufe eine ca. 17 gew.-%ige Ethylbenzolhydroperoxidlösung mit Propen an einem homogenen Mo-Katalysator umgesetzt wird. Insgesamt werden bei diesem Verfahren pro Mol Hydroperoxid 7,2 mol Propen eingesetzt.

Die gleiche Schrift offenbart auf den Seiten 6-28 bis 6-47 ein Verfahren, in dem in einer Stufe eine ca. 20 gew.-%ige Ethylbenzolhydroperoxidlösung mit Propen an einem heterogenen Ti/SiO<sub>2</sub>-Katalysator umgesetzt wird, wobei das Alken epoxidiert wird. Pro Mol Hydroperoxid werden hierbei 16,7 mol Propen eingesetzt.

Ebenfalls in dieser Schrift wird auf den Seiten 5-1 bis 5-21 ein Verfahren offenbart, in dem in einer Stufe eine ca. 40 gew.-%ige tert-Butylhydroperoxidlösung mit Propen an einem homogenen Mo-Katalysator umgesetzt wird, wobei das Alken epoxidiert wird. Pro Mol Hydroperoxid werden hierbei 3,7 mol Propen eingesetzt.

Die gleiche Schrift offenbart auf den Seiten 5-22 bis 5-43 ein Verfahren, in dem in zwei direkt aufeinanderfolgenden Stufen eine ca. 72 gew.-%ige tert-Butylhydroperoxidlösung mit Propen und einem homogenen Mo-Katalysator umgesetzt wird, wobei das Alken epoxidiert wird. Dabei werden pro Mol Hydroperoxid 1,2 Mol Propen eingesetzt.

Ein Nachteil dieser Verfahren ist darin zu sehen, daß entweder mit einem relativ hohen Überschuß an der umzusetzenden organischen Verbindung oder mit einem sehr konzentrierten Hydroperoxid gearbeitet werden muß, um optimale Selektivitäten zu erreichen.

Eine Aufgabe der vorliegenden Erfindung war es daher, ein Verfahren bereitzustellen, das es erlaubt, den Überschuß an umzusetzender organischer Verbindung so gering wie möglich zu halten und ein relativ niedrig konzentriertes Hydroperoxid einzusetzen.

Daher betrifft die vorliegende Erfindung ein Verfahren zur Umsetzung einer organischen Verbindung mit einem Hydroperoxid, das mindestens die folgenden Stufen (i) bis (iii) umfaßt:

(i) Umsetzung des Hydroperoxides mit der organischen Verbindung unter Erhalt einer Mischung, umfas-

send die umgesetzte organische Verbindung und nicht umgesetztes Hydroperoxid,  
(ii) Abtrennung des nicht umgesetzten Hydroperoxides aus der aus Stufe (i) resultierenden Mischung,  
(iii) Umsetzung des abgetrennten Hydroperoxides aus Stufe (ii) mit der organischen Verbindung.

Demgemäß findet die Umsetzung der organischen Verbindung mit dem Hydroperoxid in mindestens zwei Stufen (i) und (iii) statt. Ebenso ist es im erfundungsgemäßen Verfahren denkbar, daß die Umsetzung der organischen Verbindung mit dem Hydroperoxid in mehr als zwei Stufen stattfindet. Je nach Anzahl der Stufen, in denen die Umsetzung stattfindet, ist es selbstverständlich im erfundungsgemäßen Verfahren auch denkbar, daß mehr als eine Stufe durchlaufen wird, in der das eingesetzte Hydroperoxid abgetrennt wird.

Als Beispiel sei z. B. ein Verfahren genannt, in dem die Umsetzung der organischen Verbindung mit dem Hydroperoxid in den Stufen (i), (iii) und (v), die Abtrennung des Hydroperoxids in den Stufen (ii) und (iv) stattfindet.

Im allgemeinen werden im erfundungsgemäßen Verfahren zwei bis fünf Stufen durchlaufen, in denen die organische Verbindung mit dem Hydroperoxid umgesetzt wird. Die vorliegende Erfindung betrifft demgemäß auch ein Verfahren zur Umsetzung einer organischen Verbindung mit einem Hydroperoxid, das die folgenden Stufen (i) bis (ix) aufweist:

- (i) Umsetzung des Hydroperoxides mit der organischen Verbindung unter Erhalt einer Mischung M<sub>i</sub>,
- (ii) Abtrennung des Hydroperoxides aus der aus Stufe (i) resultierenden Mischung M<sub>i</sub>,
- (iii) Umsetzung des abgetrennten Hydroperoxides aus Stufe (ii) mit der organischen Verbindung unter Erhalt einer Mischung M<sub>II</sub>,
- (iv) Abtrennung des Hydroperoxides aus der aus Stufe (iii) resultierenden Mischung M<sub>II</sub>,
- (v) Umsetzung des abgetrennten Hydroperoxides aus Stufe (iv) mit der organischen Verbindung unter Erhalt einer Mischung M<sub>III</sub>,
- (vi) Abtrennung des Hydroperoxides aus der aus Stufe (v) resultierenden Mischung M<sub>III</sub>,
- (vii) Umsetzung des abgetrennten Hydroperoxides aus Stufe (vi) mit der organischen Verbindung unter Erhalt einer Mischung M<sub>IV</sub>,
- (viii) Abtrennung des Hydroperoxides aus der aus Stufe (vii) resultierenden Mischung M<sub>IV</sub>,
- (ix) Umsetzung des abgetrennten Hydroperoxides aus Stufe (viii) mit der organischen Verbindung.

Bevorzugt sind im erfundungsgemäßen Verfahren zwei bis vier Stufen, in denen die organische Verbindung mit Hydroperoxid umgesetzt wird, besonders bevorzugt zwei bis drei Stufen. Vorzugsweise findet die Umsetzung der organischen Verbindung mit dem Hydroperoxid in zwei Stufen statt.

Die Abtrennung des Hydroperoxids in den oben genannten Abtrennstufen (ii), (iv), (vi) und (viii) kann im erfundungsgemäßen Verfahren nach allen gängigen Verfahren gemäß dem Stand der Technik durchgeführt werden. Dabei können in unterschiedlichen Abtrennstufen auch unterschiedliche Abtrennmethoden eingesetzt werden.

Vorzugsweise erfolgt die Abtrennung des Hydroperoxides in den Abtrennstufen destillativ. Je nach den Anforderungen des Verfahrens ist dabei eine Abtrennung in einer oder mehreren Destillationskolonnen möglich. Vorzugsweise wird in einer Abtrennstufe zur Abtrennung des Hydroperoxides eine Destillationskolonne verwendet.

Im Rahmen des erfundungsgemäßen Verfahrens ist es

denkbar, für jede Stufe, in der das Hydroperoxid abgetrennt wird, eine eigene Abtrennvorrichtung  $A_i$  vorzusehen. Ebenso ist es möglich, bei entsprechender Reaktionsführung und bei mehreren Abtrennstufen die Abtrennungen in einer einzigen Abtrennvorrichtung durchzuführen.

Sind mehrere Abtrennstufen vorgesehen, ist es auch möglich, durch geeignete Reaktionsführung jeweils zwei oder auch mehr Abtrennstufen in jeweils einer Abtrennvorrichtung durchzuführen. Ganz allgemein ist es demgemäß möglich, für  $n$  Abtrennstufen insgesamt  $m$  Abtrennvorrichtungen vorzusehen, wobei  $1 \leq m \leq n$ .

Sollte im Anschluß an die letzte Stufe, in der eine Umsetzung der organischen Verbindung mit dem Hydroperoxid stattfindet, noch eine weitere Abtrennung des Hydroperoxids gewünscht sein, beispielsweise, um eventuell restliches Hydroperoxid zu recyceln, so ist dies im Rahmen des erfundungsgemäßen Verfahrens selbstverständlich ebenfalls möglich.

Aus der Mischung, die aus einer Umsetzungsstufe, in der die organische Verbindung mit dem Hydroperoxid umgesetzt wird, resultiert, kann im erfundungsgemäßen Verfahren in einer Abtrennvorrichtung neben dem Hydroperoxid auch die umgesetzte organische Verbindung abgetrennt werden. Natürlich ist es auch möglich, nach Abtrennung des Hydroperoxids das verbleibende Reaktionsgut in eine weitere, 25 speziell zu diesem Zweck vorgeschene Abtrennvorrichtung zu überführen und dort aus dem Reaktionsgut die umgesetzte organische Verbindung abzutrennen.

In beiden Fällen ist es beispielsweise möglich, die umgesetzte organische Verbindung in den  $n$  Abtrennvorrichtungen zu sammeln und nach Beendigung der Umsetzungen der organischen Verbindung mit dem Hydroperoxid abzutrennen.

Bevorzugt wird die umgesetzte organische Verbindung jedoch in der jeweiligen Abtrennvorrichtung neben dem Hydroperoxid abgetrennt. Bei einer destillativen Abtrennung ist es beispielsweise möglich, die umgesetzte organische Verbindung über Kopf der Mischung zu entnehmen, und im Seitenabzug das Hydroperoxid aus der Mischung abzutrennen.

Im erfundungsgemäßen Verfahren ist es natürlich ebenfalls möglich, bei Verwendung einer Destillationsanlage als Abtrenneinrichtung das Hydroperoxid nicht über Seitenabzug, sondern über Sumpf aus der Mischung abzutrennen.

Erfolgt die Abtrennung des Hydroperoxids und/oder der umgesetzten organischen Verbindung in einer Destillationsanlage, ist es im erfundungsgemäßen Verfahren möglich, eventuell anfallende hochsiedende Komponenten der Mischung, die als Nebenprodukte aus der Umsetzung der organischen Verbindung mit dem Hydroperoxid anfallen, über 45 Sumpf abzutrennen. Dabei ist es auch denkbar, beispielsweise durch Zugabe von vorzugsweise gasförmigen, niedrigsiedenden Komponenten, wie z. B. der organischen Verbindung, vorzugsweise Propen, an sich, die Sumpftemperatur zu erniedrigen.

Beispiele für solche niedrigsiedenden Komponenten sind u. a. Kohlenwasserstoffe mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen wie beispielsweise Methan, Ethan, Propan, Butan, Ethen oder Butene. Ebenso können beispielsweise Stickstoff oder Argon eingesetzt werden.

Selbstverständlich ist es im erfundungsgemäßen Verfahren möglich, auch mehrere organische Verbindungen mit dem Hydroperoxid umzusetzen. Ebenso ist es denkbar, zur Umsetzung mehrere Hydroperoxide zu verwenden.

Werden mehrere organische Verbindungen und/oder mehrere Hydroperoxide miteinander in den jeweiligen Stufen umgesetzt, so können in den Mischungen verschiedenartige Produkte, die aus den Umsetzungen resultieren, vorliegen.

Werden diese wiederum in den jeweiligen Abtrennstufen destillativ abgetrennt, kann es notwendig sein, zur Abtrennung mehrerer Destillationskolonnen vorzusehen. Ebenso kann die destillative Abtrennung mehrerer Hydroperoxide aus der Mischung mehrere Destillationskolonnen erforderlich machen.

Die Umsetzung der organischen Verbindung mit dem Hydroperoxid in der Stufe (i) findet in einem dafür geeigneten Reaktor  $R_i$  statt. Als Edukte der Umsetzung werden die umzusetzende organische Verbindung, das Hydroperoxid und, sofern erforderlich, ein oder auch mehrere bei der Umsetzung geeignete und/oder erforderliche Lösungsmittel eingesetzt.

In den Reaktor  $R_i$  fließen also im erfundungsgemäßen Verfahren mindestens die Ströme  $E_i^1$  und  $E_i^2$ . Gegebenenfalls kann beispielsweise ein weiterer Strom  $E_i^3$  in den Reaktor  $R_i$  fließen. Dabei bezeichnet:

$E_i^1$  den Strom, der die umzusetzende Verbindung enthält, gegebenenfalls gelöst in einem oder mehreren Lösungsmitteln,

$E_i^2$  den Strom, der das Hydroperoxid enthält, gegebenenfalls gelöst in einem oder mehreren Lösungsmitteln, und

$E_i^3$  den Strom, der ein oder mehrere Lösungsmittel enthält.

Die einzelnen Ströme  $E_i^1$  werden im Rahmen des erfundungsgemäßen Verfahrens vor dem Zufluß in den Reaktor  $R_i$  vorzugsweise zu einem Strom  $E_i$  vereinigt. Ebenso ist es prinzipiell möglich, die einzelnen Ströme einzeln in den Reaktor  $R_i$  zu leiten. Weiter ist es auch möglich, die einzelnen Ströme, in sinnvollen Kombinationen zusammengeführt, in den Reaktor  $R_i$  zu leiten. Beispielsweise könnten  $E_i^1$  und  $E_i^3$  35 vor dem Eingang in den Reaktor  $R_i$  zusammengeführt und in den Reaktor  $R_i$  geleitet werden, in den als separater Strom zusätzlich der Strom  $E_i^2$  fließt.

Bevorzugt wird im erfundungsgemäßen Verfahren ein Strom  $E_i$  in den Reaktor  $R_i$  geleitet, der aus der Kombination der Ströme  $E_i^1$ ,  $E_i^2$  und  $E_i^3$  besteht. Dabei ist ein Strom bevorzugt, bei dem die Konzentrationen der einzelnen Komponenten des Stroms so gewählt sind, daß der Strom flüssig und einphasig ist.

Bevorzugt werden dabei Hydroperoxidkonzentrationen in  $E_i$  verwendet, die im Bereich von 0,01 bis 10, besonders bevorzugt im Bereich von 0,1 bis 9 Gew.-%, weiter besonders bevorzugt im Bereich von 1 bis 8 Gew.-% und insbesondere im Bereich von 5 bis 7 Gew.-% liegen.

Die Konzentration der umzusetzenden organischen Verbindung wird beispielsweise so gewählt, daß das molare Verhältnis von umzusetzender organischer Verbindung zu Hydroperoxid im Bereich von 0,7 bis 3,0, bevorzugt im Bereich von 0,8 bis 2,7, weiter besonders bevorzugt im Bereich von 0,9 bis 2,3 und insbesondere im Bereich von 1,0 bis 2,0 liegt.

Je nach Temperatur, die zur Umsetzung der organischen Verbindung mit dem Hydroperoxid im Reaktor  $R_i$  gewählt wird, kann es im erfundungsgemäßen Verfahren sinnvoll sein, den Strom oder die Ströme vor dem Eingang in den Reaktor  $R_i$  vorzutemperieren.

Die Reaktionsbedingungen werden im Reaktor  $R_i$  im erfundungsgemäßen Verfahren so gewählt, daß der Hydroperoxidumsatz im allgemeinen im Bereich von 70 bis 95%, bevorzugt im Bereich von 80 bis 94,5%, und insbesondere bevorzugt im Bereich von 85 bis 94% liegt.

Weiter werden Druck  $p_i$ , Temperatur  $T_i$  und Verweilzeit  $\Delta t_i$  des Reaktionsgutes im Reaktor  $R_i$  bevorzugt so gewählt, daß die Mischung  $M_i$ , die aus der Umsetzung resultiert, flüs-

sig und einphasig ist.

Dabei werden Drücke  $p_1$  gewählt, die im allgemeinen im Bereich vom Eigendruck bis 100 bar liegen, bevorzugt im Bereich vom Eigendruck bis 40 bar und besonders bevorzugt im Bereich vom Eigendruck bis 30 bar.

Die Temperaturen  $T_1$  liegen im allgemeinen im Bereich von 0 bis 120°C, bevorzugt im Bereich von 10 bis 100°C, weiter bevorzugt im Bereich von 20 bis 90°C und besonders bevorzugt im Bereich von 30 bis 80°C.

Nach der Umsetzung im Reaktor  $R_1$  wird die resultierende Mischung als Strom  $M_1$  der Abtrennvorrichtung  $A_1$  zugeführt. Dort wird, wie oben beschrieben, das Hydroperoxid aus der Mischung abgetrennt.

Erfolgt bei destillativer Abtrennung hierbei auch die Abtrennung von umgesetzter organischer Verbindung, so wird die Destillation im allgemeinen so geführt, daß aus  $M_1$  mindestens 50%, bevorzugt mindestens 60%, weiter bevorzugt mindestens 70%, besonders bevorzugt mindestens 80% und insbesondere bevorzugt mindestens 90% der umgesetzten organischen Verbindung abgetrennt werden.

Bevorzugt wird die Abtrennung so geführt, daß eine flüssige Mischung, die das Hydroperoxid enthält, abgetrennt wird. Diese abgetrennte Mischung wird im folgenden mit  $M_1^2$  bezeichnet. Dabei ist es möglich, daß die abgetrennte Mischung, die das Hydroperoxid enthält, zusätzlich zum Hydroperoxid beispielsweise noch geringe Mengen an nicht umgesetzter organischer Verbindung und/oder umgesetzter organischer Verbindung enthält. Ebenso kann die Mischung  $M_1^2$ , die das abgetrennte Hydroperoxid enthält, gegebenenfalls erforderliches Lösungsmittel enthalten, das über den Strom  $E_1^2$  zugesetzt wurde, oder Lösungsmittel, das gegebenenfalls in den Strömen  $E_1^1$  und/oder  $E_1^3$  enthalten war.

Wird in der Abtrennvorrichtung  $A_1$  auch die umgesetzte organische Verbindung abgetrennt, so resultiert aus dieser Abtrennung, aus der bevorzugt eine flüssige Mischung oder eine Flüssigkeit-Gas-Mischung erhalten wird, ein Strom, der im folgenden mit  $M_1^1$  bezeichnet wird. Dieser enthält im erfundungsgemäßen Verfahren neben der umgesetzten organischen Verbindung gegebenenfalls die nicht umgesetzte organische Verbindung und/oder geringe Mengen an gegebenenfalls erforderlichem Lösungsmittel, das über den Strom  $E_1^3$  zugesetzt wurde, oder Lösungsmittel, das gegebenenfalls in den Strömen  $E_1^1$  und/oder  $E_1^2$  enthalten war.

Wird, wie oben beschrieben, die Abtrennung in einer Destillationsanlage durchgeführt, und werden über Sumpf hochsiedende Anteile von  $M_1$  abgetrennt, so resultiert aus dieser Abtrennung ein Strom  $M_1^1$ . Solche hochsiedenden Anteile können beispielsweise Nebenprodukte der Umsetzung in Reaktor  $R_1$  sein, die im Strom  $M_1$  enthalten sind.

Nach dem Durchlauf der Stufen (i) und (ii) wird im erfundungsgemäßen Verfahren das abgetrennte Hydroperoxid in der Stufe (iii) erneut mit der organischen Verbindung umgesetzt.

Dabei ist es beispielsweise möglich, den Strom  $M_1^2$ , der das Hydroperoxid enthält, in den Reaktor  $R_1$  zurückzuführen und dort mit der organischen Verbindung umzusetzen.

Hierbei sind im Rahmen des erfundungsgemäßen Verfahrens verschiedene Möglichkeiten der Rückführung von  $M_1^2$  in  $R_1$  denkbar.

Unabhängig davon, wie die Ströme  $E_1^1$  bis  $E_1^3$  in den Reaktor  $R_1$  geführt werden, kann beispielsweise  $M_1^2$  als separater Strom in  $R_1$  geleitet werden. Dabei ist eine Vorerwärmung, wie oben beschrieben, des Stromes  $M_1^2$  möglich.

Ebenso ist es beispielsweise möglich,  $M_1^2$  dem Strom  $E_1^2$  zuzuführen, bevor der resultierende Strom  $E_1^2 + M_1^2$  in  $R_1$  geleitet wird. Möglich ist ebenso,  $M_1^2$  dem Strom  $E_1^1$ , der aus der Kombination aus  $E_1^1$  bis  $E_1^3$  resultiert, oder einem geeigneten, wie oben beschriebenen Strom zuzumischen, der aus

einer geeigneten Kombination aus irgendzwei der Ströme  $E_1^1$  bis  $E_1^3$  resultiert.

Wird eine der Verfahrensweisen gewählt, in der  $M_1^2$  vor dem Zulauf in  $R_1$  einem anderen Strom zugegeben wird, so werden im Rahmen des erfundungsgemäßen Verfahrens die Konzentrationen der Komponenten der entsprechenden Ströme vorzugsweise so eingestellt, daß der resultierende Strom flüssig und einphasig bleibt.

In einer bevorzugten Ausführungsform des erfundungsgemäßen Verfahrens wird der Strom  $M_1^2$  in einen zweiten Reaktor  $R_{II}$  geleitet. Der Strom  $M_1^2$  stellt also, bezogen auf den Reaktors  $R_{II}$ , in Analogie zu den Strömen, die in den Reaktor  $R_1$  fließen, den Strom  $E_{II}^2$  dar. Da im Reaktor  $R_{II}$  im erfundungsgemäßen Verfahren gemäß Stufe (iii) eine erneute Umsetzung des abgetrennten Hydroperoxides mit der umzusetzenden organischen Verbindung stattfindet, ist bezüglich des Reaktors  $R_{II}$  mindestens ein weiterer Strom  $E_{II}^1$  erforderlich. Gegebenenfalls kann beispielsweise auch ein Strom  $E_{II}^3$  erforderlich sein.

Dabei bezeichnet, analog zu den oben beschriebenen Strömen  $E_1^1$  bis  $E_1^3$ ,

$E_{II}^1$  den Strom, der die umzusetzende Verbindung enthält, gegebenenfalls gelöst in einem oder mehreren Lösungsmitteln,

$E_{II}^2$  den Strom, der das Hydroperoxid enthält, gegebenenfalls gelöst in einem oder mehreren Lösungsmitteln, und

$E_{II}^3$  den Strom, der ein oder mehrere Lösungsmittel enthält.

Ebenfalls analog zu den oben beschriebenen Strömen  $E_1^1$  ist es möglich, die Ströme  $E_{II}^1$  einzeln oder zusammengeführt in geeigneten Kombinationen in den Reaktor  $R_{II}$  zu leiten. Ebenso ist, wie oben beschrieben, eine Vortemperierung der Ströme  $E_{II}^1$  möglich.

Vorzugsweise wird der Strom  $E_{II}^2$  mit einem Strom  $E_{II}^1$  oder einem Strom  $E_{II}^1 + E_{II}^3$  zusammengeführt und der resultierende Strom in  $R_{II}$  geleitet. Die Konzentrationen der Komponenten der Ströme  $E_{II}^1$  bzw.  $E_{II}^3$  werden dabei bevorzugt so gewählt, daß der Strom  $E_{II}$ , der in den Reaktor  $R_{II}$  fließt, flüssig und einphasig ist.

Dabei wird die Konzentration der umzusetzenden organischen Verbindung so gewählt, daß das molare Verhältnis von umzusetzender organischer Verbindung zu Hydroperoxid bevorzugt im Bereich von 0,7 bis 10,0, weiter bevorzugt im Bereich von 0,8 bis 8,0, besonders bevorzugt im Bereich von 0,9 bis 6,0 und insbesondere im Bereich von 1,0 bis 4,0 liegt.

Wie im Reaktor  $R_1$  wird die Umsetzung im Reaktor  $R_{II}$  bei einem Druck  $p_{II}$ , einer Temperatur  $T_{II}$  und einer Verweilzeit  $\Delta t_{II}$  des Reaktionsgutes durchgeführt, daß Hydroperoxidumsätze erzielt werden, die im allgemeinen im Bereich von  $\geq 90\%$ , bevorzugt im Bereich von  $\geq 92\%$ , weiter bevorzugt im Bereich  $\geq 95\%$  und besonders bevorzugt im Bereich von 95 bis 99,5% liegen.

Dabei werden Drücke  $p_{II}$  gewählt, die im allgemeinen im Bereich vom Eigendruck bis 100 bar liegen, bevorzugt im Bereich vom Eigendruck bis 40 bar und besonders bevorzugt im Bereich vom Eigendruck bis 30 bar.

Die Temperaturen  $T_{II}$  liegen im allgemeinen im Bereich von 0 bis 120°C, bevorzugt im Bereich von 10 bis 100°C, weiter bevorzugt im Bereich von 20 bis 90°C und besonders bevorzugt im Bereich von 30 bis 80°C.

Selbstverständlich ist es im erfundungsgemäßen Verfahren möglich, die Mischung  $M_{II}$ , die aus der Umsetzung im Reaktor  $R_{II}$  resultiert, dem Reaktor  $R_{II}$  zu entnehmen und, wie oben bereits beschrieben, einer Abtrennvorrichtung  $A_{II}$

oder auch der Abtrennvorrichtung A<sub>I</sub> zuzuführen und gegebenenfalls eine dritte Umsetzung anzuschließen.

In einer bevorzugten Ausführungsform des erfindungsgemäßen Verfahrens werden jedoch zwei Reaktoren R<sub>I</sub> und R<sub>II</sub> sowie eine Abtrennvorrichtung A<sub>I</sub> verwendet. Demgemäß betrifft die vorliegende Erfindung ein Verfahren, das dadurch gekennzeichnet ist, daß Umsetzung in den Stufen (i) und (iii) in zwei getrennten Reaktoren durchgeführt werden.

Als Reaktoren können selbstverständlich alle denkbaren, für die jeweiligen Reaktionen am besten geeigneten Reaktoren eingesetzt werden. Dabei ist im erfindungsgemäßen Verfahren ein Reaktor nicht auf einen einzelnen Behälter beschränkt. Vielmehr ist es auch möglich, als beispielsweise Reaktor R<sub>I</sub> oder beispielsweise Reaktor R<sub>II</sub> eine Rührkesselkaskade einzusetzen.

Bevorzugt werden im erfindungsgemäßen Verfahren als Reaktoren Festbettreaktoren verwendet. Demgemäß betrifft die vorliegende Erfindung ein Verfahren, wie oben beschrieben, das dadurch gekennzeichnet ist, daß als Reaktoren für die Umsetzungen Festbettreaktoren verwendet werden. Weiter bevorzugt werden als Festbettreaktoren Festbettrohrreaktoren eingesetzt.

Insbesondere wird im erfindungsgemäßen Verfahren als Reaktor R<sub>I</sub> ein isothermer Festbettreaktor und als Reaktor R<sub>II</sub> ein adiabatischer Festbettreaktor verwendet.

Daher betrifft die vorliegende Erfindung auch eine Vorrichtung, umfassend einen isothermen Festbettreaktor (I), eine Abtrenneinrichtung (II) und einen adiabatischen Festbettreaktor (III).

Ebenso betrifft die vorliegende Erfindung die Verwendung dieser Vorrichtung zur Umsetzung einer organischen Verbindung mit einem Hydroperoxid.

Weiter betrifft die vorliegende Erfindung diese Verwendung, wobei zur Umsetzung der organischen Verbindung mit dem Hydroperoxid die folgenden Stufen (i) bis (iii) durchlaufen werden:

- (i) Umsetzung des Hydroperoxides mit der organischen Verbindung unter Erhalt einer Mischung, umfassend die umgesetzte organische Verbindung und nicht umgesetztes Hydroperoxid,
- (ii) Abtrennung des nicht umgesetzten Hydroperoxides aus der aus Stufe (i) resultierenden Mischung,
- (iii) Umsetzung des abgetrennten Hydroperoxides aus Stufe (ii) mit der organischen Verbindung.

Als Hydroperoxid können im erfindungsgemäßen Verfahren sämtliche aus dem Stand der Technik bekannten Hydroperoxide, die für die Umsetzung der organischen Verbindung geeignet sind, eingesetzt werden.

Beispiele für solche Hydroperoxide sind etwa tert-Butylhydroperoxid oder Ethylbenzolhydroperoxid, die im oben genannten SRI-Report 2E "Propylene Oxide" genannt sind. Das tert-Butylhydroperoxid wird hierin hergestellt ausgehend von Isobutan und Sauerstoff. Das Ethylbenzolhydroperoxid wird hergestellt ausgehend von Ethylbenzol und Sauerstoff.

Bevorzugt wird als Hydroperoxid im vorliegenden Verfahren Wasserstoffperoxid eingesetzt. Demgemäß betrifft die vorliegende Erfindung auch ein Verfahren, wie oben beschrieben, das dadurch gekennzeichnet ist, daß als Hydroperoxid Wasserstoffperoxid verwendet wird. Bevorzugt wird dabei eine wässrige Wasserstoffperoxidlösung verwendet.

Zur Herstellung von Wasserstoffperoxid kann dabei beispielsweise auf das Anthrachinonverfahren zurückgegriffen werden, nach dem praktisch die gesamte Menge des weltweit produzierten Wasserstoffperoxids hergestellt wird. Die-

ses Verfahren beruht auf der katalytischen Hydrierung einer Anthrachinon-Verbindung zur entsprechenden Anthrachinon-Verbindung, nachfolgender Umsetzung derselben mit Sauerstoff unter Bildung von Wasserstoffperoxid und anschließender Abtrennung des gebildeten Wasserstoffperoxids durch Extraktion. Der Katalyzyklus wird durch erneute Hydrierung der rückgebildeten Anthrachinon-Verbindung geschlossen.

Einen Überblick über das Anthrachinonverfahren gibt "Ullmann's Encyclopedia of Industrial Chemistry", 5. Auflage, Band 13, Seiten 447 bis 456.

Ebenso ist es denkbar, zur Wasserstoffperoxidgewinnung Schwefelsäure durch anodische Oxidation unter gleichzeitiger kathodischer Wasserstoffentwicklung in Peroxodischwefelsäure zu überführen. Die Hydrolyse der Peroxodischwefelsäure führt dann auf dem Weg über Peroxoschwefelsäure zu Wasserstoffperoxid und Schwefelsäure, die damit zurückgewonnen wird.

Möglich ist selbstverständlich auch die Darstellung von Wasserstoffperoxid aus den Elementen.

In den einzelnen Reaktoren ist eine Reaktionsführung dergestalt denkbar, daß bei entsprechender Wahl der organischen Verbindung die Umsetzung derselben mit dem Hydroperoxid bei den gegebenen Druck- und Temperaturverhältnissen ohne Zusatz von Katalysatoren erfolgt.

Bevorzugt wird jedoch eine Verfahrensweise, bei der zur größeren Effizienz der Umsetzung ein oder mehrere geeignete Katalysatoren zugesetzt werden, wobei wiederum heterogene Katalysatoren bevorzugt eingesetzt werden. Demgemäß betrifft die vorliegende Erfindung ein Verfahren, wie oben beschrieben, das dadurch gekennzeichnet ist, daß die organische Verbindung bei der Umsetzung mit einem heterogenen Katalysator in Kontakt gebracht wird.

Dabei sind prinzipiell alle heterogenen Katalysatoren denkbar, die für die jeweilige Umsetzung geeignet sind. Bevorzugt werden dabei Katalysatoren verwendet, die ein poröses oxidisches Material wie z. B. ein Zeolith umfassen. Vorzugsweise werden Katalysatoren eingesetzt, die als poröses oxidisches Material ein Titan-, Vanadium-, Chrom-, Niob- oder zirkoniumhaltigen Zeolith umfassen.

Dabei sind im einzelnen Titan-, Vanadium-, Chrom-, Niob-, zirkoniumhaltige Zeolithe mit Pentasil-Zeolith-Struktur, insbesondere die Typen mit röntgenografischer Zuordnung zur BEA-, MOR-, TON-, MTW-, FER-, MFI-, MEL-, CHA-, ERI-, RHO-, GIS-, BOG-, NON-, EMT-, HEU-, KFI-, FAU-, DDR-, MTT-, RUT-, RTH-, LTL-, MAZ-, GME-, NES-, OFF-, SGT-, EUO-, MFS-, MWW- oder MFI/MEL-Mischstruktur sowie ITQ-4 zu nennen. Denkbar sind für den Einsatz im erfindungsgemäßen Verfahren weiterhin titanhaltige Zeolithe mit der Struktur des UTD-1, CIT-1 oder CIT-5. Als weitere titanhaltige Zeolithe sind solche mit der Struktur des ZSM-48 oder ZSM-12 zu nennen.

Als besonders bevorzugt sind für das erfindungsgemäße Verfahren Ti-Zeolithe mit MFI-, MEL- oder MFI/MEL-Mischstruktur anzusehen. Als weiter bevorzugt sind im einzelnen die Ti-enthaltenden Zeolith-Katalysatoren, die im allgemeinen als "TS-1", "TS-2", "TS-3" bezeichnet werden, sowie Ti-Zeolithe mit einer zu  $\beta$ -Zeolith isomorphen Gerüststruktur zu nennen.

Insbesondere bevorzugt wird im erfindungsgemäßen Verfahren ein heterogener Katalysator, der das titanhaltige Silikat TS-1 umfaßt, verwendet.

Dabei ist es im erfindungsgemäßen Verfahren möglich, als Katalysator das poröse oxidische Material an sich zu verwenden. Selbstverständlich ist es jedoch auch möglich, als Katalysator einen Formkörper einzusetzen, der das poröse oxidische Material umfaßt. Dabei können zur Herstellung

des Formkörpers, ausgehend von dem porösen oxidischen Material, alle Verfahren gemäß dem Stand der Technik eingesetzt werden.

Vor, während oder nach dem einen oder mehreren Formgebungsschritten in diesen Verfahren können auf das Katalysatormaterial Edelmetalle in Form geeigneter Edelmetallkomponenten, beispielsweise in Form von wasserlöslichen Salzen aufgebracht werden. Vorzugsweise wird dieses Verfahren angewendet, um Oxidationskatalysatoren auf der Basis von Titan- oder Vanadiumsilikaten mit Zeolithstruktur herzustellen, wobei Katalysatoren erhältlich sind, die einen Gehalt von 0,01 bis 30 Gew.-% an einem oder mehreren Edelmetallen aus der Gruppe Ruthenium, Rhodium, Palladium, Osmium, Iridium, Platin, Rhenium, Gold und Silber aufweisen. Derartige Katalysatoren sind beispielsweise in der DE-A 1 96 23 609.6 beschrieben, die hiermit bzgl. der darin beschriebenen Katalysatoren voll umfänglich in den Kontext der vorliegenden Anmeldung durch Bezugnahme aufgenommen wird.

Selbstverständlich können die Formkörper konfektioniert werden. Sämtliche Verfahren zur Zerkleinerung sind dabei denkbar, beispielsweise durch Spalten oder Brechen der Formkörper, ebenso wie weitere chemische Behandlungen, wie beispielsweise vorstehend beschrieben.

Bei Verwendung eines Formkörpers oder auch mehr davon als Katalysator kann dieser im erfindungsgemäßen Verfahren nach erfolgter Deaktivierung durch ein Verfahren regeneriert werden, bei dem die Regenerierung durch gezieltes Abbrennen der für die Deaktivierung verantwortlichen Beläge erfolgt. Dabei wird bevorzugt in einer Inertgasatmosphäre gearbeitet, die genau definierte Mengen an Sauerstoff-liefernden Substanzen enthält. Dieses Regenerierungsverfahren ist in der DE-A 197 23 949.8 beschrieben, die diesbezüglich vollumfänglich in den Kontext der vorliegenden Anmeldung durch Bezugnahme einbezogen werden.

Unter den Reaktionen, die im erfindungsgemäßen Verfahren möglich sind, seien beispielhaft die folgenden genannt: die Epoxidation von Olefinen wie z. B. die Herstellung von Propenoxid aus Propen und  $H_2O_2$  oder aus Propen und Gemischen, die  $H_2O_2$  in situ liefern; Hydroxylierungen wie z. B. die Hydroxylierung mono-, bi- oder polycyclischer Aromaten zu mono-, di- oder höher substituierten Hydroxyaromaten, beispielsweise die Umsetzung von Phenol und  $H_2O_2$  oder von Phenol und Gemischen, die  $H_2O_2$  in situ liefern, zu Hydrochinon; die Oximbildung aus Ketonen unter Anwesenheit von  $H_2O_2$  oder Gemischen, die  $H_2O_2$  in situ liefern, und Ammoniak (Ammonoximierung), beispielsweise die Herstellung von Cyclohexanoxim aus Cyclohexanon; die Baeyer-Villiger-Oxidation.

Bevorzugt werden im erfindungsgemäßen Verfahren organische Verbindungen umgesetzt, die mindestens eine C-C-Doppelbindung aufweisen. Demgemäß betrifft die vorliegende Erfindung ein Verfahren, wie oben beschrieben, das dadurch gekennzeichnet ist, daß die organische Verbindung mindestens eine C-C-Doppelbindung aufweist.

Als Beispiele für solche organischen Verbindungen mit mindestens einer C-C-Doppelbindung seien folgende Alkene genannt:

Ethen, Propen, 1-Buten, 2-Buten, Isobuten, Butadien, Pentene, Piperylen, Hexene, Hexadiene, Heptene, Octene, Diisobuten, Trimethylpenten, Nonene, Dodecen, Tridecen, Tetra- bis Eicosene, Tri- und Tetrapropen, Polybutadiene, Polyisobutene, Isoprene, Terpene, Geraniol, Linalool, Linalylacetat, Methylencyclopropan, Cyclopenten, Cyclohexen, Norbornen, Cyclohexen, Vinylcyclohexan, Vinyloxiran, Vinylcyclohexen, Styrol, Cycloocten, Cyclooctadien, Vinylnorbornen, Inden, Tetrahydroinden, Methylstyrol, Dicyclo-

pentadien, Divinylbenzol, Cyclododecen, Cyclododecatrien, Stilben, Diphenylbutadien, Vitamin A, Betacarotin, Vinylidenfluorid, Allylhalogenide, Crotylchlorid, Methallylchlorid, Dichlorbuten, Allylalkohol, Methallylalkohol, Butenole, Butendiole, Cyclopentendiole, Pentenole, Octadienole, Tridecenole, ungesättigte Steroide, Ethoxyethen, Isoeugenol, Anethol, ungesättigte Carbonsäuren wie z. B. Acrylsäure, Methacrylsäure, Crotonsäure, Maleinsäure, Vinylsäure, ungesättigte Fettsäuren, wie z. B. Ölsäure, Linolsäure, Palmitinsäure, natürlich vorkommende Fette und Öle.

Bevorzugt werden im erfindungsgemäßen Verfahren Alkene verwendet, die 2 bis 8 Kohlenstoffatome enthalten. Besonders bevorzugt werden Ethen, Propen, und Buten umgesetzt. Insbesondere bevorzugt wird Propen umgesetzt.

Ein weiterer Vorteil des erfindungsgemäßen Verfahrens, neben der Tatsache, daß ein geringerer Überschuß an umzusetzender organischer Verbindung im Verhältnis zu Hydroperoxid erreicht werden kann, ist darin zu sehen, daß über die Abtrennung von Hydroperoxid und dessen erneute Umsetzung mit der organischen Verbindung ein hoher Gesamtumsatz des Hydroperoxides erzielt werden kann. Gleichzeitig werden Folgereaktionen des Produktes reduziert.

In Fig. 1 ist eine bevorzugte Ausführungsform der Apparatur dargestellt. Dabei bezeichnet:

$E_1$  einen Strom, enthaltend beispielsweise flüssiges Propen, wäßrige Wasserstoffperoxidlösung und Methanol,

$R_1$  einen isothermen Festbettrohrreaktor,

$M_1$  einen Strom, resultierend aus der Umsetzung in Reaktor  $R_1$ ,

$A_1$  eine Destillationskolonne zur Abtrennung über Kopf, über Seitenabzug und über Sumpf,

$M_1^1$  einen Strom, resultierend aus der Abtrennung über Kopf, der vorwiegend Propen, Propenoxid und Methanol umfaßt,

$M_1^2$  einen Strom, resultierend aus der Abtrennung über Seitenabzug, der vorwiegend Methanol und wäßrige Wasserstoffperoxidlösung umfaßt und der in den Reaktor  $R_II$  geleitet wird,

$M_1^3$  einen Strom aus der Abtrennung über Sumpf, der hochsiedende Nebenprodukte, beispielsweise Methoxypropanol und Propantriol, aus der Umsetzung in Reaktor  $R_1$  umfaßt,

$M_1^4$  einen optionalen Strom, der der Destillationsanlage  $A_1$  zugegeben wird, um die Sumpftemperatur niedrig zu halten, beispielsweise gasförmiges Propen,  $R_II$  einen adiabatischen Festbettrohrreaktor,

$E_II$  einen Strom, der flüssiges Propen und Methanol umfaßt und in den Reaktor  $R_II$  geleitet wird,

$M_II$  einen Strom aus Reaktor  $R_II$ , der Propen, Propenoxid und Methanol umfaßt.

In Fig. 2 ist eine weitere bevorzugte Ausführungsform der Apparatur dargestellt. Dabei bezeichnet:

$E_1$  einen Strom, enthaltend beispielsweise flüssiges Propen, wäßrige Wasserstoffperoxidlösung und Methanol,

$R_1$  einen isothermen Festbettrohrreaktor,

$M_1$  einen Strom, resultierend aus der Umsetzung in Reaktor  $R_1$ ,

$A_1$  eine Destillationskolonne zur Abtrennung über Kopf und über Sumpf,

$M_1^1$  einen Strom, resultierend aus der Abtrennung über Kopf, der vorwiegend Propen, Propenoxid und Methanol umfaßt,

$M_I^2$  einen Strom, resultierend aus der Abtrennung über Sumpf, der vorwiegend Wasserstoffperoxid, Wasser, Methanol und hochsiedende Nebenprodukte umfaßt und der in den Reaktor  $R_{II}$  geleitet wird,

$R_{II}$  einen adiabatischen Festbettrohrreaktor,

$E_{II}$  einen Strom, der flüssiges Propen und Methanol umfaßt und in den Reaktor  $R_{II}$  geleitet wird,

$M_{II}$  einen Strom aus Reaktor  $R_{II}$ , der Propen, Propenoxid und Methanol umfaßt.

### Beispiele

#### Beispiel 1

##### Zweistufige Fahrweise mit Zwischenabtrennung

Durch einen ersten Rohrreaktor mit ca. 50 ml Reaktionsvolumen, gefüllt mit 23,1 g verstrangtem TS-1, wurden Flüsse von 10,5 g/h Wasserstoffperoxid (ca. 40 Gew.-%), 20 58 g/h Methanol und 10 g/h Propen bei 40°C Reaktionstemperatur und 20 bar Reaktionsdruck geleitet.

Zur Analyse des Austrags des Rohrreaktors wurde die Reaktionsmischung in einem Sambay-Verdampfer gegen Atmosphärendruck entspannt. Die abgetrennten Leichtsieder 25 wurden online in einem Gaschromatographen analysiert. Der flüssige Reaktionsaustrag wurde gesammelt, gewogen und ebenfalls gaschromatographisch analysiert.

Der erreichte Wasserstoffperoxid-Umsatz betrug 85%. Die Propenoxid-Selektivität bezüglich Wasserstoffperoxid 30 betrug 95%.

Der Austrag aus dem ersten Reaktor, der Methanol, Wasser, Propenoxid, Nebenprodukte, unumgesetztes Propen und Wasserstoffperoxid enthielt, wurde in eine Kolonne entspannt. Die Kolonne wurde bei Normaldruck betrieben und 35 hatte ca. 15 theoretische Stufen.

Bei einer Sumpftemperatur von ca. 69°C gelang eine Abtrennung des Propenoxids aus der Mischung bis auf < 1 Gew.-%.

Über Kopf gingen hierbei neben Propenoxid das leichter 40 siedende Propen und Teile des Methanols. Am Kopf wurde bei 50°C in einem Teilkondensator der für die Trennung in der Kolonne benötigte Rücklauf kondensiert. Das Kopfprodukt wurde gasförmig abgezogen und der Aufarbeitung zugeführt.

Das Sumpfprodukt wurde einem zweiten Rohrreaktor zugeführt.

Durch einen zweiten Rohrreaktor mit ca. 50 ml Reaktionsvolumen, gefüllt mit 28 g verstrangtem TS-1, wurden das Sumpfprodukt aus der Zwischenabtrennung und ein 50 Propenstrom von ca. 9 g/h bei 40°C Reaktionstemperatur und 20 bar Reaktionsdruck geleitet.

Nach Verlassen des Reaktors wurde die Reaktionsmischung in einem Sambay-Verdampfer gegen Atmosphärendruck entspannt. Die abgetrennten Leichtsieder wurden online in einem Gaschromatographen analysiert. Der flüssige Reaktionsaustrag wurde gesammelt, gewogen und ebenfalls gaschromatographisch analysiert.

Der erreichte Wasserstoffperoxid-Umsatz betrug 96%. Die Propenoxid-Selektivität bezüglich Wasserstoffperoxid 60 betrug 96%.

In der Summe betrug der Wasserstoffperoxid-Umsatz 99,4% und die Propenoxid-Selektivität 95–96%. Dies ergab eine Propenoxid-Ausbeute bezüglich Wasserstoffperoxid von 94–95%.

### Beispiel 2

##### Einstufige Fahrweise ohne Zwischenabtrennung

5 Durch einen Rohrreaktor mit ca. 50 ml Reaktionsvolumen, gefüllt mit 20 g verstrangtem TS-1, wurden Flüsse von 8,3 g/h Wasserstoffperoxid (ca. 40 Gew.-%), 49 g/h Methanol und 7,8 g/h Propen bei 40°C Reaktionstemperatur und 20 bar Reaktionsdruck geleitet.

10 Nach Verlassen des Reaktors wurde die Reaktionsmischung in einen Sambay-Verdampfer gegen Atmosphärendruck entspannt. Die abgetrennten Leichtsieder wurden online in einem Gaschromatographen analysiert. Der flüssige Reaktionsaustrag wurde gesammelt, gewogen und ebenfalls 15 gaschromatographisch analysiert.

Der erreichte Wasserstoffperoxid-Umsatz betrug 98,4%. Die Propenoxid-Selektivität bezüglich Wasserstoffperoxid betrug 80,3%. Die Propenoxid-Ausbeute bezüglich Wasserstoffperoxid betrug 79%.

### Patentansprüche

1. Verfahren zur Umsetzung einer organischen Verbindung mit einem Hydroperoxid, das mindestens die folgenden Stufen (i) bis (iii) umfaßt:

(i) Umsetzung des Hydroperoxides mit der organischen Verbindung unter Erhalt einer Mischung, umfassend die umgesetzte organische Verbindung und nicht umgesetztes Hydroperoxid,

(ii) Abtrennung des nicht umgesetzten Hydroperoxides aus der aus Stufe (i) resultierenden Mischung,

(iii) Umsetzung des abgetrennten Hydroperoxides aus Stufe (ii) mit der organischen Verbindung.

2. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß die Umsetzungen in den Stufen (i) und (iii) in zwei getrennten Reaktoren durchgeführt werden.

3. Verfahren nach Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, daß als Reaktoren für die Umsetzungen Festbettreaktoren verwendet werden.

4. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, daß als Hydroperoxid Wasserstoffperoxid verwendet wird.

5. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 4, dadurch gekennzeichnet, daß die organische Verbindung bei der Umsetzung mit einem heterogenen Katalysator in Kontakt gebracht wird.

6. Verfahren nach Anspruch 5, dadurch gekennzeichnet, daß der heterogene Katalysator ein titanhaltiges Silicalit umfaßt.

7. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 6, dadurch gekennzeichnet, daß die organische Verbindung mindestens eine C-C-Doppelbindung aufweist.

8. Vorrichtung, umfassend einen isothermen Festbettreaktor (I), eine Abtrenneinrichtung (II) und einen adiabatischen Festbettreaktor (III).

9. Verwendung einer Vorrichtung gemäß Anspruch 8 zur Umsetzung einer organischen Verbindung mit einem Hydroperoxid.

10. Verwendung nach Anspruch 9, wobei zur Umsetzung der organischen Verbindung mit dem Hydroperoxid die folgenden Stufen (i) bis (iii) durchlaufen werden:

(i) Umsetzung des Hydroperoxides mit der organischen Verbindung unter Erhalt einer Mischung, umfassend die umgesetzte organische Verbindung und nicht umgesetztes Hydroperoxid,

(ii) Abtrennung des nicht umgesetzten Hydroper-

oxides aus der aus Stufe (i) resultierenden Mi-  
schung,  
(iii) Umsetzung des abgetrennten Hydroperoxy-  
des aus Stufe (ii) mit der organischen Verbindung.  
11. Verwendung nach Anspruch 10, dadurch gekenn-  
zeichnet, daß die Umsetzung in Stufe (i) in einem iso-  
thermen Festbettreaktor (I), die Abtrennung in Stufe  
(ii) mittels einer Abtrenneinrichtung (II) und die Um-  
setzung in Stufe (iii) in einem adiabatischen Festbettre-  
aktor (III) durchgeführt wird. 5 10

Hierzu 1 Seite(n) Zeichnungen

15

20

25

30

35

40

45

50

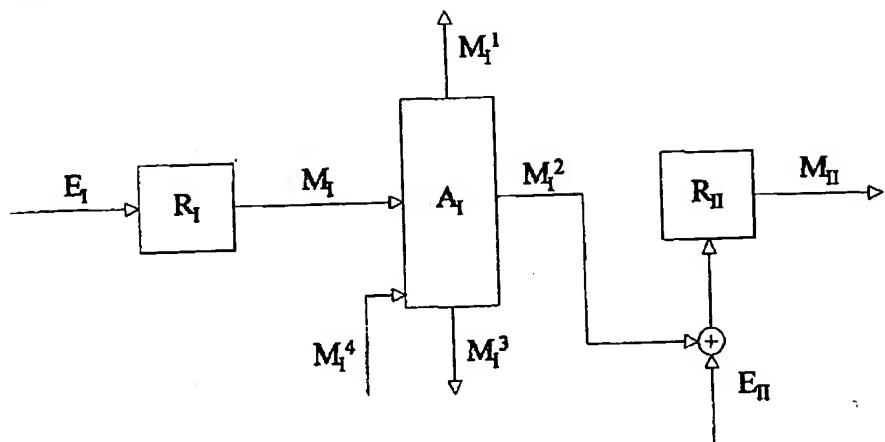
55

60

65

**- Leerseite -**

Figur 1



Figur 2

